

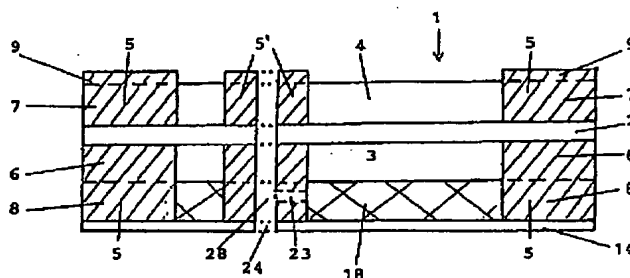


**INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)**

(51) Internationale Patentklassifikation 6 : <b>H01M 8/02, 8/24</b>		<b>A1</b>	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 98/33225</b>
			(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 30. Juli 1998 (30.07.98)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP98/00479			(81) Bestimmungsstaaten: AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, GM, GW, HU, ID, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
(22) Internationales Anmeldedatum: 29. Januar 1998 (29.01.98)			
(30) Prioritätsdaten: 197 03 214.1 29. Januar 1997 (29.01.97) DE			
(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): MAGNET-MOTOR GESELLSCHAFT FÜR MAGNETMOTORISCHE TECHNIK MBH [DE/DE]; Petersbrunner Strasse 2, D-82319 Starnberg (DE).			
(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KOSCHANY, Arthur [DE/DE]; Lindenberg 56, D-82343 Pöcking (DE). SCHWESINGER, Thomas [DE/DE]; Zur Fähre 8, D-94356 Kirchroth (DE).			
(74) Anwalt: KLUNKER, SCHMITT-NILSON, HIRSCH; Winzerstrasse 106, D-80797 München (DE).			<b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist. Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>

(54) Title: MEMBRANE-ELECTRODE UNIT WITH AN INTEGRATED WEAR RING, AND PRODUCTION PROCESS

(54) Bezeichnung: MEMBRAN-ELEKTRODENEINHEIT MIT INTEGRIERTEM DICHTRAND UND VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG



**(57) Abstract**

The invention relates to a membrane-electrode unit (1) with an integrated wear ring for fuel cells provided with a polymer electrolyte membrane (2), the anode (3) being mounted on one face thereof and the cathode on the other face (4). The unit (1) is made of a multilayer material containing both anode and cathode material, between which is inserted the material of the polymer electrolyte membrane, from which fragments of appropriate size are separated, while in said fragments, the both sides of the membrane are entirely covered by the electrodes. On the periphery of the fragment is mounted a wear ring (5) in such a way that the latter (5) passes through a peripheral area (6', 7') of at least one electrode (3, 4) and adheres to that membrane portion which is adjacent to the peripheral area, and/or to the front faces of at least one electrode and the membrane.

### (57) Zusammenfassung

Eine Membran-Elektrodeneinheit (1) mit integriertem Dichtrand für eine Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle mit einer Polymerelektrolytmembran (2), einer an einer Oberfläche der Membran angeordneten Anode (3) und einer an der anderen Oberfläche der Membran angeordneten Kathode (4) wird hergestellt aus einem Schichtmaterial aus Anodenmaterial, Kathodenmaterial und dazwischen angeordnetem Polymerelektrolytmembran-Material, von dem Stücke geeigneter Größe abgetrennt werden, wobei in den abgetrennten Stücken die Membran an beiden Seiten vollständig von den Elektroden bedeckt ist. Am Umfang des Teilstücks wird ein Dichtrand (5) dergestalt ausgebildet, daß der Dichtrand (5) einen Randbereich (6', 7') mindestens einer der Elektroden (3, 4) durchdringt und an dem dem Randbereich benachbarten Bereich der Membran haftet und/oder der Dichtrand an den Stirnflächen mindestens einer der Elektroden und den Stirnflächen der Membran haftet.

### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

MEMBRAN-ELEKTRODENEINHEIT MIT  
INTEGRIERTEM DICHTRAND UND VERFAHREN  
ZU IHRER HERSTELLUNG

5

Die vorliegende Erfindung betrifft eine Membran-Elektrodeneinheit für eine Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle mit einer Polymerelektrolytmembran, einer an einer Oberfläche der Membran angeordneten Anode und einer an der anderen Oberfläche der Membran angeordneten Kathode, sowie ein Verfahren zur Herstellung der Membran-Elektrodeneinheit.

10

15

20

25

30

35

Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzellen, wie sie üblicherweise zur Erzeugung von elektrischem Strom verwendet werden, enthalten eine Anode, eine Kathode und eine dazwischen angeordnete Ionenaustauschermembran. Eine Mehrzahl von Brennstoffzellen bildet einen Brennstoffzellenstapel, wobei die einzelnen Brennstoffzellen durch als Stromsammler wirkende bipolare Platten voneinander getrennt werden. Die anodenseitige bipolare Platte einer Zelle ist dabei gleichzeitig die kathodenseitige bipolare Platte der Nachbarzelle. Zur Erzeugung von Elektrizität wird ein Brenngas, z.B. Wasserstoff, in den Anodenbereich und ein Oxidationsmittel, z.B. Luft oder Sauerstoff, in den Kathodenbereich eingebracht. Anode und Kathode enthalten in den mit der Polymerelektrolytmembran in Kontakt stehenden Bereichen jeweils eine Katalysatorschicht. In der Anodenkatalysatorschicht wird der Brennstoff unter Bildung von Kationen und freien Elektronen oxidiert, in der Kathodenkatalysatorschicht wird das Oxidationsmittel durch Aufnahme von Elektronen reduziert. Alternativ können die beiden Katalysatorschichten auch an den entgegengesetzten Seiten der Membran aufgebracht werden. Die Struktur aus Anode, Membran, Kathode und den entsprechenden Katalysatorschichten wird als Membran-Elektrodeneinheit bezeichnet. Die anodenseitig gebildeten Kationen wandern durch die Ionenaustauschermembran zur Kathode und reagieren mit dem reduzierten Oxidationsmittel, wobei, wenn Wasserstoff als Brenngas und Sauerstoff als Oxidationsmittel verwendet werden, Wasser entsteht. Die bei der Reaktion von

Brenngas und Oxidationsmittel entstehende Wärme wird mittels Kühlung abgeführt. Zur besseren Verteilung der Reaktionsgase sowie gegebenenfalls zur Stützung der Membranelektrodeneinheit können zwischen Elektroden und bipolaren Platten Gasführungsstrukturen, z.B. Gitternetze, vorgesehen werden.

5

Nach dem Einbau in eine Brennstoffzelle steht die Membran-Elektrodeneinheit anodenseitig mit dem Brenngas und kathodenseitig mit dem Oxidationsmittel in Kontakt. Die Polymerelektrolytmembran trennt die Bereiche, in denen sich Brenngas bzw. Oxidationsmittel befindet, voneinander. Um zu verhindern, daß Brenngas und Oxidationsmittel direkt miteinander in Kontakt kommen können, was explosionsartige Reaktionen hervorrufen könnte, muß eine verlässliche Abdichtung der Gasräume voneinander gewährleistet sein. Hierbei stellt insbesondere die Abdichtung gegen das Brenngas Wasserstoff, das hervorragende Diffusions-

10

15

Um zu verhindern, daß in der Brennstoffzelle entlang den Rändern der Membran ein Gasaustausch stattfinden kann, geht man herkömmlicherweise folgendermaßen vor: bei der Herstellung herkömmlicher Membran-Elektrodeneinheiten werden die Abmessungen für Membran und Elektroden so gewählt, daß bei dem sandwichartigen Anordnen der Membran zwischen den Elektroden die Membran an jeder Seite ein gutes Stück über die Fläche der Elektroden hinausragt. Die herkömmliche Membran-Elektrodeneinheit weist also eine Membran auf, deren Randbereiche nicht von Elektrodenmaterial bedeckt sind. Um den Umfang der Membran-Elektrodeneinheit werden auf beiden Seiten der Membran flache Dichtungen, z.B. aus gerecktem PTFE, angebracht, die die überstehenden Bereiche der Membran bedecken. Bei einer quadratischen Membran-Elektrodeneinheit beispielsweise werden beidseitig der Membran quadratische Rahmen dergestalt aufgepreßt und/oder verklebt, daß sie die überstehenden Bereiche der Membran mindestens zum Teil bedecken. Diese herkömmlichen Membran-Elektrodeneinheiten haben zum einen den Nachteil, daß sie recht aufwendig in ihrer Herstellung

20

25

30

sind, da Anode, Kathode und Membran jeweils separat zugeschnitten werden und anschließend für jede einzelne Membran-Elektroden-  
einheit paßgenau zusammengesetzt werden müssen. Eine preisgünstige Her-  
stellung von Membran-Elektroden-einheiten als Quadratmeterware ist nicht  
5 möglich. Ebenso müssen die Dichtungen separat zugeschnitten und dann  
paßgenau angebracht werden.

Ein weiterer Nachteil der herkömmlichen Membran-Elektroden-einheiten  
zeigt sich beim Einbau in eine Brennstoffzelle. In der Brennstoffzelle  
10 muß mindestens auf der Anodenseite zwischen Membran-Elektroden-  
einheit und der die Zelle begrenzenden Bipolarplatte ein gasdichter  
Raum ausgebildet werden. Üblicherweise wird hier mit Dichtungsringen  
oder -Streifen zwischen Membran-Elektroden-einheit und bipolarer Platte  
gearbeitet, wobei jeweils mehrere Zellen in Reihe zusammengespannt  
15 werden und eine gemeinsame Brenngaszufuhr erhalten. Erst beim Zu-  
sammenspannen werden die gasdichten Räume ausgebildet. Tritt ein  
Leck auf, ist dieses schwer lokalisierbar, und es kann auch nicht eine  
Zelle allein, sondern nur die zusammengespannte Einheit, in der das  
Leck auftritt, entfernt werden. Dies ist mit erheblichem Arbeitsaufwand  
20 und Ausfall an Brennstoffzellen-Nutzungsdauer verbunden.

Gelegentlich wird darauf verzichtet, die Membran-Elektroden-einheit mit  
einem aufgepreßten Dichtrahmen zu versehen. Das Abdichten geschieht  
dann beim Einbau in eine Brennstoffzelle, indem zwischen dem nicht  
25 von Elektrodenmaterial bedeckten Teil der Membran und der angrenzen-  
den Bipolarplatte ein Dichtring mit eingespannt wird. In beiden Fällen  
ergibt sich hierbei ein Spalt zwischen Elektrodenmaterial und Dichtung,  
was die Anordnung empfindlich gegenüber mechanischen Verletzungen  
macht, insbesondere bei dünnen oder spröden Membranen. Außerdem  
30 besteht die Gefahr, daß die Membran-Elektroden-einheit nicht völlig eben  
eingespannt wird, so daß die Membran mit dem metallischen  
Stromableiter in Kontakt kommt. Dabei kann das Metall von einer  
sauren Membran teilweise gelöst werden. Die Metallionen treten in die  
Membran ein, wodurch deren Leitfähigkeit leidet.

Die vorliegende Erfindung erlaubt es, die oben angeführten Nachteile zu überwinden.

5 Aufgabe der Erfindung ist es, eine Membran-Elektrodeneinheit für eine Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle bereitzustellen, die an mindestens einer Seite dergestalt mit einer Bipolarplatte verbunden werden kann, daß zwischen Membran und Bipolarplatte ein gasdichter Raum ausgebildet wird.

10 Aufgabe der Erfindung ist es außerdem, eine Membran-Elektrodeneinheit bereitzustellen, bei der die Anordnung Membran-Elektrodeneinheit/Bipolarplatte separat auf Gasdichtheit geprüft werden kann.

15 Aufgabe der Erfindung ist es ferner, ein einfaches, kostengünstiges Verfahren zur Herstellung derartiger Membran-Elektrodeneinheiten bereitzustellen.

20 Die Aufgaben werden gelöst durch die Membran-Elektrodeneinheit gemäß Anspruch 1 und das Verfahren zur Herstellung der Membran-Elektrodeneinheit gemäß Anspruch 14.

Bevorzugte Weiterbildungen der Erfindung sind in den jeweiligen Unteransprüchen angegeben.

25 Erfindungsgemäß werden zur Herstellung der Membran-Elektrodeneinheit nicht Anode, Kathode und Membran separat zugeschnitten und die einzelnen Teile dann miteinander verbunden, sondern es wird ein Schichtmaterial aus Anodenmaterial, Kathodenmaterial und dazwischenliegendem Membranmaterial hergestellt, beispielsweise mittels eines  
30 Walzverfahrens entsprechend den bei der Papierherstellung verwendeten. Dabei erhält man Quadratmeterware, aus der die einzelnen Membran-Elektrodeneinheiten in einem Arbeitsgang in der gewünschten Größe ausgeschnitten, ausgestanzt oder anderweitig abgetrennt werden können. Eine so erhaltene Membran-Elektrodeneinheit enthält, abgesehen von der

Stirnfläche, keine freie Membranfläche, vielmehr wird die Membran an beiden Oberflächen vollständig von Anodenmaterial bzw. Kathodenmaterial bedeckt. Falls gewünscht, können in der Membran-Elektroden-

5

einheit Durchführungen ausgebildet werden, ebenfalls in einem Arbeits-

gang.

Die zur Herstellung der erfindungsgemäßen Membran-Elektroden-

verwendeten Membranen, Elektroden und Katalysatoren an sich können

konventionelle Materialien sein, wie sie üblicherweise für entsprechende

Zwecke eingesetzt werden. Als Elektroden, d.h. Anoden und Kathoden,

kommen beispielsweise Diffusionselektroden aus Kohlepapier oder

graphitisierten Geweben in Frage, die einen Katalysator enthalten, der

parallel und auch senkrecht zur Elektrodenfläche beliebig verteilt sein

kann. Anstelle von Kohlepapier oder graphitisierten Geweben können

aber auch Kohlefaservliese verwendet werden. Als Katalysator kann

beispielsweise Platin auf Kohlenstoff verwendet werden. Die Elektroden

können nur die Katalysatorschicht, einen Teil der Diffusionsschicht oder

die gesamte Diffusionsschicht enthalten. Alternativ kann der Katalysator

auch auf den Oberflächen der Membran angebracht sein. Als

Membranen werden vorteilhaft die üblichen ionenleitenden Polymere,

beispielsweise Nafion oder ein sulfoniertes Polyetheretherketonketon

(PEEKK, erhältlich von Hoechst), verwendet.

10

15

20

Die Membran-Elektroden-einheiten in Form von Quadratmeterware

können hergestellt werden unter Verfahrensbedingungen wie die kon-

ventionellen, einzelnen Membran-Elektroden-einheiten. Im Falle der

Erfindung werden je eine Bahn aus Elektrodenmaterial an jeder Ober-

fläche einer Bahn einer in ihrer  $H^+$ -Form vorliegenden Polymerelek-

trolytmembran angeordnet und anschließend bevorzugt bei Drücken von

etwa 30 bar bis zu 500 bar und Temperaturen bis zu 250°C aufgewalzt.

Typisch sind Drücke zwischen etwa 80 und 250 bar und Temperaturen

zwischen etwa 80 und 120° C. Wenn das Elektrodenmaterial die kataly-

tisch aktive Schicht enthält, muß es dergestalt auf die Membran aufge-

25

30

walzt werden, daß die katalytisch aktive Schicht in Kontakt mit der Membran steht.

5 Alternativ kann auch zuerst eine Elektrode und in einem zweiten Arbeitsgang die zweite Elektrode aufgebracht werden.

10 Aus diesem Membran-Elektroden-Schichtmaterial werden in einem Arbeitsgang Membran-Elektrodeneinheiten in der gewünschten Größe zugeschnitten, und zumindest um den Umfang einer jeden Membran-Elektrodeneinheit wird ein Dichtrand ausgebildet, der die Membran und die Elektrode bzw. die Elektroden gasdicht miteinander verbindet und  
15 der außerdem gasdicht mit einer Bipolarplatte verbunden werden kann. Der hierin verwendete Begriff "Membran-Elektrodeneinheit" im Sinne der Erfindung bezeichnet also Schichtmaterialstücke aus Anoden-, Kathoden- und Membranmaterial ohne oder mit Dichtrand, wobei abge-  
20 sehen von der Stirnfläche im wesentlichen keine nicht von Elektrodenmaterial bedeckte Membranfläche vorhanden ist. Der Dichtrand wird hergestellt, indem man ein Dichtmittel, beispielsweise einen Kunststoff oder ein Gemisch von Kunststoffen, in Randbereiche der Elektroden am Umfang der Membran-Elektrodeneinheit eindringen läßt, so daß die Poren der Elektroden im wesentlichen gefüllt werden und kein Gas mehr durchlassen. Der Kunststoff, bevorzugt ein Thermoplast oder ein aus-  
25 härthbarer, flüssiger Kunststoff von niedriger Viskosität kann durch Kapillarwirkung in die Elektroden eindringen und anschließend ausgehärtet werden, oder es kann Kunststoff in flüssiger Form, d.h. geschmolzen, unausgehärtet oder in einem Lösungsmittel gelöst, mit der Elektrode, gegebenenfalls durch Anwendung des erforderlichen Drucks (bevorzugt bis etwa 200 bar) und/oder erhöhter Temperatur in einer geeigneten Vorrichtung verpreßt werden, und die Poren der Elektrode  
30 auf diese Weise gefüllt werden. Gegebenenfalls kann vorher evakuiert werden, um Luft aus den Poren zu entfernen und so das Eindringen des Dichtmittels zu erleichtern. Bevorzugte Kunststoffe sind Polyethylene, Polypropylene und Polyamide sowie Epoxidharze, Silicone und Polyesterharze. Zwecks besserer Benetzung der von Kunststoff zu durch-



5 dringenden Randbereiche der Elektroden können diese vor der Behandlung mit Kunststoff mit einem Lösungsmittel für den Kunststoff benetzt oder an der Oberfläche angefräst werden. Auch ein teilweises Oxidieren der entsprechenden Bereiche der Kohlenstoffmaterialien der Elektroden kann vorteilhaft sein.

10 Der so um den Umfang der Membran-Elektrodeneinheit ausgebildete Dichtrand verhindert ein Austreten von Reaktionsgasen aus den Elektroden "radial" nach außen durch "Verstopfen" der Gaswege im Randbereich der Elektroden und sorgt außerdem für eine gasdichte Verklebung und Anhaftung des Randbereichs der Elektroden mit dem angrenzenden Membranbereich.

15 Derartige Dichtungen können in allen Bereichen der Membran-Elektrodeneinheit ausgebildet werden, in denen Ränder auftreten, z.B. auch bei Durchführungen durch die aktiven Flächenbereiche der Membran-Elektrodeneinheit, wie sie häufig nötig sind zur Zuleitung von Gasen, Wasser oder für Spannschrauben.

20 Alternativ kann ein Dichtrand ausgebildet werden, indem man um den Umfang der Membran-Elektrodeneinheiten an deren im wesentlichen bündig abschließenden Stirnseiten einen Dichtrahmen anbringt, bzw. Durchführungen ganz oder teilweise mit einem Dichtrahmen auskleidet. Als Material für den Dichtrahmen kommen bevorzugt Kunststoffe oder  
25 Kunststoffgemische in Frage, insbesondere Thermoplaste wie Polyethylene, Polypropylene und Polyamide, oder aushärtbare Kunststoffe wie Epoxidharze, Silicone oder Polyesterharze. Der Dichtrahmen wird so angebracht, daß er sich fest mit den Stirnflächen der Membran oder den Stirnflächen von mindestens einer Elektrode und Membran  
30 verbindet und gasdicht an ihnen haftet.

Die erforderlichen Durchführungen können auch unmittelbar im Dichtrand selbst vorgesehen werden.

Auch Mischformen zwischen beiden Dichtrandvarianten, d.h. Dichtränder, die teilweise innerhalb des Elektrodenmaterials und teilweise an den Stirnseiten ausgebildet sind, sind möglich.

5 Die am Umfang und ggf. an Durchführungen abgedichteten Membran-Elektrodeneinheiten können nun mit bipolaren Platten verbunden werden. In der Regel dürfen bipolare Platten nicht direkt auf den Elektroden aufliegen, sondern es muß zwischen Elektrode und bipolarer Platte ein freier Raum verbleiben, in dem eine Gasführungsstruktur, z.B. ein Netz,  
10 zur besseren Verteilung von Reaktionsgasen über die Oberfläche der Elektrode vorgesehen werden kann. Dieser freie Raum kann dadurch geschaffen werden, indem man den Dichtrand nicht bündig mit der Elektrodenoberfläche abschließen läßt, sondern ihn über die Elektrodenoberfläche überstehend ausbildet. Bei Elektroden mit überstehendem  
15 Dichtrand kann eine ebene bipolare Platte mit dem Dichtrand verbunden, z.B. gasdicht verklebt werden, oder im Brennstoffzellenstapel unter permanentem Druck angepreßt und damit gasdicht werden. Schließt der Dichtrand bündig mit der Elektrodenoberfläche ab, kann eine bipolare Platte verwendet werden, die in dem Bereich, in dem die Gasführungsstruktur angebracht werden soll, dünner ausgebildet ist als in dem Be-  
20 reich, der mit dem Dichtrand der Membran-Elektrodeneinheit gasdicht verbunden wird. Bipolare Platten, die eine integrierte Gasführungsstruktur enthalten, z.B. Graphitplatten mit eingefrästen Rillen, erfordern ebenfalls keine überstehenden Dichtränder.

25 Die erfindungsgemäße Abdichtung der Membran-Elektrodeneinheit ist generell für alle Reaktionsgase anwendbar. Mit besonderem Vorteil kann sie jedoch an der Wasserstoff-Seite einer Brennstoffzelle eingesetzt werden, da Wasserstoff zum einen sehr gut diffundiert und daher die  
30 größten Probleme bei der Abdichtung bereitet, und zum anderen sehr reaktiv ist und im Falle eines Lecks erhebliche Schwierigkeiten auftreten.

Die Ausbildung eines Dichtrandes durch Einbringen eines Dichtmittels in die Elektrodenrandbereiche sowie die Abdichtung von Durchführungen durch Einbringen eines Dichtmittels in die die Durchführungen umgebenden Elektrodenbereiche ist grundsätzlich bei jeder Membran-Elektrodeneinheit mit porösen Elektroden möglich, unabhängig davon, ob ein bündiger Stirnseitenabschluß vorliegt. Insbesondere ist auch die erfindungsgemäße Abdichtung von Durchführungen möglich, unabhängig davon, welche Art von Dichtung für den äußeren Umfang der Membran-Elektrodeneinheit gewählt wird.

Besonders vorteilhafte Ausführungsformen der Erfindung werden anhand der nachstehenden Figuren erläutert.

In den Zeichnungen zeigen:

Fig. 1 einen Querschnitt durch eine erfindungsgemäße Membran-Elektrodeneinheit, noch ohne Dichtrand,

Fig. 2 eine Aufsicht auf eine erfindungsgemäße Membran-Elektrodeneinheit,

Fig. 3 einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit gemäß dem Stand der Technik,

Fig. 4 einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit mit Dichtrand und Durchführung gemäß einer Ausführungsform der Erfindung,

Fig. 5 einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit mit Dichtrand, Durchführung und bipolarer Platte gemäß einer Ausführungsform der Erfindung,

Fig. 6 einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit mit Dichtrand gemäß einer anderen Ausführungsform der Er-

findung, in Kombination mit beidseitig angebrachten bipolaren Platten,

5 Fig. 7 einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit mit Dichtrand gemäß einer weiteren Ausführungsform der Erfindung in Kombination mit einseitig angebrachter bipolarer Platte,

10 Fig. 8 einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit gemäß der Erfindung mit überstehenden, mit bipolaren Platten verbundenen Dichträndern,

15 Fig. 9 einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit gemäß der Erfindung mit bündigen, mit bipolaren Platten verbundenen Dichträndern,

Fig. 10 einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit gemäß der Erfindung mit Durchführungen im Dichtrand,

20 Fig. 11 eine Draufsicht auf eine Membran-Elektrodeneinheit gemäß der Erfindung mit Durchführungen im Dichtrand

25 Fig. 12 einen Querschnitt durch eine in einen Brennstoffzellenstapel eingebaute Brennstoffzelle mit erfindungsgemäßer Membran-Elektrodeneinheit.

30 Membran-Elektrodeneinheiten 1 bestehen aus einer Membran 2, einer an einer Oberfläche der Membran angebrachten Anode 3 und einer an der anderen Oberfläche der Membran angebrachten Kathode 4. Die der Membran zugewandten Seite der Elektroden enthält jeweils Katalysator. Bei konventionellen Membran-Elektrodeneinheiten, wie sie in Fig. 3 gezeigt sind, besitzen Anode 3 und Kathode 4 gleiche Abmessungen, während die Membran 2 deutlich größer ist, so daß beim Laminieren Membran-Randbereiche 25 entstehen, die nicht von porösem Elektroden-

material bedeckt sind und an denen Dichtungen angebracht werden können. Allerdings schließt ein derartiger Aufbau einfache und schnelle Herstellungsverfahren aus.

5 Erfindungsgemäß können Membran-Elektrodeneinheiten einfach und schnell hergestellt werden, indem man großflächige Stücke oder Bahnen aus Membran-Elektrodeneinheitmaterial herstellt und dieses dann in einzelne Membran-Elektrodeneinheiten der gewünschten Größe aufteilt. Die so erhaltene einzelne Membran-Elektrodeneinheit weist allerdings,  
10 wie aus Fig. 1 ersichtlich ist, außer der Stirnfläche keine Membranfläche auf, die nicht von Elektrodenmaterial bedeckt ist. Konventionelle Dichtungen können daher aufgrund der Porosität der Elektroden nicht angebracht werden.

15 Erfindungsgemäß wird die Membran-Elektrodeneinheit 1 mit an den Stirnflächen bündigem Abschluß von Membran 2, Anode 3 und Kathode 4 dadurch abgedichtet, daß man ein Dichtmittel, beispielsweise einen Kunststoff, in einen Randbereich 6' der Anode 3 und einen Randbereich 7' der Kathode 4 eindringen läßt. Die Randbereiche 6' und 7' definieren  
20 lediglich die Bereiche, in die das Dichtmittel eindringen soll. Das Dichtmittel füllt die Poren der porösen Elektroden und vermittelt eine gasdichte Haftung an der Membran. Ein Austritt von Reaktionsgasen in molekularer Form in "radialer" Richtung aus den Elektroden heraus oder ein Austritt entlang den Grenzflächen zwischen Elektroden und  
25 Membran wird damit verhindert.

Der Dichtrand 5 der erfindungsgemäßen Membran-Elektrodeneinheit kann hinsichtlich Form und Abmessungen unterschiedlich ausgebildet sein. Fig. 4 zeigt eine Membran-Elektrodeneinheit, bei der der anoden-  
30 seitige Teil 6 des Dichtrands 5, d.h. der in den Randbereich 6' der Anode eindringende Bereich des Dichtrands 5, bündig mit der membranabgewandten Oberfläche der Anode 3 abschließt, während der kathoden-  
seitige Teil 7 des Dichtrands 5, d.h. der in den Randbereich 7' der Kathode eindringende Bereich des Dichtrands 5, einen Bereich 9 enthält,

der über die membranabgewandte Oberfläche der Kathode 4 übersteht. Die Membran-Elektrodeneinheit enthält außerdem eine Durchführung 28 mit einem Dichtrand 5', d.h. anodenseitigem Dichtrand 26 und kathodenseitigem Dichtrand 27. Der kathodenseitige Teil 27 des Dichtrands 5' steht über die membranabgewandte Oberfläche der Kathode über. Bei der in Fig. 4 gezeigten Ausführungsform gehen sowohl Durchführung 28 als auch Dichtrand 5' durch die gesamte Membran-Elektrodeneinheit 1 hindurch. Auch in die Membran 2 ist Dichtmittel eindiffundiert. Durchführung und/oder Dichtrand können jedoch auch in einer Elektrode enden. Beispielsweise kann durch eine in der Anode teilweise dichtrandfreie Durchführung Wasserstoff zur Anode gebracht werden und in sie hineindiffundieren. Alternativ kann die Durchführung auch im Dichtrand integriert sein, wie nachfolgend noch näher ausgeführt werden wird.

Fig. 2 zeigt eine Aufsicht auf die Ausführungsform gemäß Fig. 4 von der Kathodenseite her. Die hier dargestellte Membran-Elektrodeneinheit ist quadratisch. Sie kann jedoch auch jede beliebige andere Form haben. Wie aus Fig. 2 ersichtlich wird, ist die Kathode an ihrem gesamten Umfang und an der Durchführung 28 abgedichtet und enthält innerhalb des überstehenden Bereichs 9 des Dichtrands einen freien Kathodenbereich 13. Ein derartiger freier Bereich erlaubt es, an der entsprechenden Elektrode Gasführungsstrukturen anzubringen, wie sie bei der Verwendung von Reaktionsgasen mit mässigen Diffusionseigenschaften oder starker Verdünnung durch Inertgase in der Regel erforderlich sind. Bei der Verwendung von Wasserstoff, der über ausgezeichnete Diffusionseigenschaften verfügt, kann häufig auf eine Gasführungsstruktur verzichtet werden. An der Anodenseite ist es daher bei der Verwendung von  $H_2$  als Brenngas möglich, die die Brennstoffzelle abschließende bipolare Platte ohne Zwischenschaltung einer Gasführungsstruktur direkt auf die Anode 3 aufzusetzen, so daß der anodenseitige Teil 6 des Dichtrands 5 hier bündig mit der Anodenoberfläche abschliessen kann, wie in Fig. 4 gezeigt.

Fig. 5 zeigt eine erfindungsgemäße Membran-Elektrodeneinheit 1, die anodenseitig eine bipolare Platte 14 aufweist. Die bipolare Platte 14 ist gasdicht mit den überstehenden Bereichen 8 des Dichtrands verbunden, z.B. verklebt, so daß zwischen Membran 2, anodenseitigem Dichtrand 6 und bipolarer Platte 14 ein gasdichter Raum gebildet wird. Die Verklebung erfolgt dabei bevorzugt durch das Dichtmittel selbst. Membran-Elektrodeneinheit und bipolare Platte 14 enthalten eine Durchführung 28 bzw. 24 für Brenngas zur Zuleitung bzw. Abführung von Brenngas. Zwischen bipolarer Platte 14, Anode 3 und den überstehenden Bereichen 8 des Dichtrands ist Raum für eine Gasführungsstruktur 18, beispielsweise ein Gitternetz. Bei der in Fig. 5 gezeigten Ausführungsform ist um die Durchführung 28 ein Dichtrand 5' ausgebildet, der über die membranabgewandte Oberfläche der Anode ebenso weit übersteht wie der am Umfang der Membran-Elektrodeneinheit ausgebildete Dichtrand 5. Die bipolare Platte 14 wird so durch den Dichtrand 5' zusätzlich abgestützt. Der durch die Durchführung 28 strömende Wasserstoff tritt zum Teil durch eine Öffnung 23 im Dichtrand 5' in die Gasführungsstruktur 18 der Brennstoffzelle ein, zum Teil wird er durch die Durchführung 24 in der bipolaren Platte 14 zur Nachbarzelle weitergeleitet. Eine derartige Einleitung von Wasserstoff (oder anderen Gasen) ist auch möglich, wenn die Durchführung in den Dichtrand 5 am Umfang der Membran-Elektrodeneinheit integriert ist.

Dasselbe ist für die Oxidationsmittelzufuhr an der Kathode möglich.

Zur Ausbildung des Dichtrandes 5 kann ein beliebiges Dichtmittel verwendet werden, das in der Lage ist, in die Poren der Elektrodenrandbereiche einzudringen, unter den Betriebsbedingungen einer Brennstoffzelle im wesentlichen unverändert dort zu verbleiben und eine Barriere gegen den Austritt von Reaktionsgasen zu bilden. Geeignet sind insbesondere aushärtbare Kunststoffe und Kunststoffe, die unter Anwendung von erhöhter Temperatur und/oder Druck gegebenenfalls nach vorherigem Evakuieren in definierten Bereichen in die Poren der Elektroden eindringen können.

Zur Ausbildung des Dichtrands wird beispielsweise ein in der passenden Größe zugeschnittenes oder ausgestanztes Stück eines Membran-Elektrodenmaterials in eine Vergußform eingelegt, wobei die Bereiche der Elektroden, an denen kein Dichtrand ausgebildet werden soll sowie ggf. die Bereiche, in denen Durchführungen vorgesehen sind, von der Vergußform abgegrenzt werden. Dann kann Kunststoff in flüssiger Form, z.B. ein durch Wärme verflüssigter Thermoplast, eingefüllt und durch Anwendung von Druck, bevorzugt bis ca. 200 bar, an den nicht abgegrenzten Bereichen der Elektroden in die Poren der Elektroden gepreßt werden. Je nach dem, ob es gewünscht ist, Dichtränder mit bündigem Abschluß mit den Elektrodenoberflächen oder Dichtränder, die über die Elektrodenoberflächen überstehen, zu erhalten, muß die Ausbildung des Formwerkzeugs entsprechend gewählt werden.

Bei Membran-Elektrodeneinheiten gängiger Abmessungen (ca. 3 cm<sup>2</sup> bis 1.600 cm<sup>2</sup>) ist es günstig, Dichtränder mit einer Breite von näherungsweise 0,3 cm bis 1 cm, typischerweise 0,5 cm, vorzusehen. Die Höhe der gegebenenfalls überstehenden Bereiche des Dichtrands richtet sich nach der Dicke der Gasführungsstruktur, die an der Elektrode angebracht werden soll.

Alternativ zum Einbringen bzw. Einpressen eines durch erhöhte Temperatur verflüssigten Kunststoffs unter Druck in die Poren der Elektroden kann auch ein aushärtbarer flüssiger Kunststoff von niedriger Viskosität verwendet werden, der auf Grund der Kapillarwirkung in die Poren in den Randbereichen der Elektroden eindringt und anschließend ausgehärtet wird.

Geeignete aushärtbare Kunststoffe sind insbesondere Epoxidharze, Silicone und Polyesterharze, geeignete Thermoplaste sind insbesondere Polyethylene, Polypropylene und Polyamide.



Im folgenden wird ein Beispiel zur Herstellung einer erfindungsgemäßen Membran-Elektrodeneinheit 1 beschrieben.

Ein Membran-Elektrodenmaterial, das besteht aus einer Membran Gore Select der Firma Gore & Associates, Inc., einer Kathode nach der Patentanmeldung P 19 544 323.3 der Firma Magnet Motor GmbH und einer konventionellen Anode, wird auf eine Größe von etwa 90 x 50 mm zugeschnitten. Bei der Kathode nach der genannten Patentanmeldung handelt es sich um eine Gasdiffusionselektrode aus einem Kohlefaservlies, das mit Ruß und Polytetrafluorethylen (Massenverhältnis hier 5:1) im wesentlichen homogen imprägniert ist, und einer katalytisch aktiven Schicht. Der hier verwendete Katalysator ist Platin auf Kohlenstoff. Die Membran ist vollständig von den Elektroden bedeckt. Die zugeschnittene Membran-Elektrodeneinheit wird in eine Vergußform eingelegt, deren Grundfläche an ihrem Umfang auf einer Breite von etwa 5 mm um etwa 0,3 mm abgesenkt ist. Die Membran-Elektrodeneinheit liegt also an ihrem Randbereich nicht direkt auf der Grundfläche der Vergußform auf. Auf die Membran-Elektrodeneinheit wird eine Platte aus Edelstahl aufgelegt, die eine der Grundplatte entsprechende, hinsichtlich der Anordnung zur Membran-Elektrodeneinheit jedoch spiegelbildliche Form aufweist. Die Membran-Elektrodeneinheit ist also auch an ihrer anderen Oberfläche in einem etwa 5 mm breiten Randbereich nicht in direktem Kontakt mit der Vergußform. Anstelle der Grund- und Abdeckplatte können bipolare Platten verwendet werden, so daß die Membran-Elektrodeneinheit bei der Ausbildung des Dichtrandes gleichzeitig mit den bipolaren Platten verklebt wird. In der Form sind Bohrungen zum Einbringen von Kunststoff vorgesehen, durch die die freien Volumina der Vergußform mit dem Epoxidharz Körapox 439 der Firma Kömmerling (Deutschland) oder dem Zweikomponentenlack CFM 340 auf DD-Basis der Firma Dr. Wiedeking gefüllt werden. Sehr gut geeignet ist auch die Epoxidharzvergußmasse 5100/5620 GA der Firma Rhenatech GmbH. Diese Kunststoffe saugen sich aufgrund der Kapillarwirkung in die Poren der Elektroden, vorwiegend an den nicht abgedeckten Bereichen der

Elektroden. Daher ist ein mehrmaliges Nachfüllen während der Topfzeit notwendig. Anschließend werden die Kunststoffe bei etwa 60°C ausgehärtet und die fertige Membran-Elektrodeneinheit entformt. Auf diese Weise wird eine Membran-Elektrodeneinheit mit Dichträndern 6  
5 im Anodenbereich und 7 im Kathodenbereich erzeugt, die eine Breite von ca. 5 mm aufweisen und etwa 0,3 mm über die Oberflächen der Elektroden überstehen.

Abhängig vom Material der Membran 2, dem verwendeten Dichtmittel  
10 und den Bedingungen, unter denen der Dichtrand hergestellt wird (Druck, Temperatur), kann das Dichtmittel unter Umständen auch in die Membran eindringen, wodurch mit Dichtmittel gefüllte Bereiche 10 der Membran entstehen, wie in Fig. 6 gezeigt. Je nach gewünschter  
15 Dichtrandvariante sind die im Einzelfall jeweils erforderlichen Reaktionsbedingungen vom Fachmann in Abhängigkeit von den gewählten Materialien durch orientierende Vorversuche leicht zu ermitteln. Membran-Elektrodeneinheiten 1 mit der Membran 2 teilweise durchdringendem Dichtrand 5 besitzen eine extrem hohe Dichtheit gegen  
20 den Austritt oder Übertritt von Reaktionsgasen. Die in Fig. 6 gezeigte Ausführungsform der erfindungsgemäßen Membran-Elektrodeneinheit 1 ist mit anodenseitiger Bipolarplatte 14 und kathodenseitiger Bipolarplatte 15 zu einer Brennstoffzelle montiert, wobei zwischen Membran 2,  
25 anodenseitigem Dichtrand 6 und Bipolarplatte 14 bzw. zwischen Membran 2, kathodenseitigem Dichtrand 7 und Bipolarplatte 15 jeweils gasdichte Räume ausgebildet sind. Zwischen den überstehenden Bereichen 8 bzw. 9 der Dichtränder sind Hohlräume zur Aufnahme von Gasführungsstrukturen 18 bzw. 19 vorgesehen.

Eine alternative Ausführungsform des Dichtrandes 5 einer erfindungsgemäßen Membran-Elektrodeneinheit 1 ist in Fig. 7 dargestellt. Der  
30 Dichtrand 5 dringt hier nicht oder nur teilweise in Poren des Elektrodenmaterials ein, sondern haftet an der Stirnfläche der Membran, der Membran und einer Elektrode oder eines Teils einer Elektrode, oder, wie in Fig. 7 gezeigt, am Umfang der gesamten Membran-

Elektrodeneinheit. Dabei muß gewährleistet sein, daß die Haftung zwischen Dichtmaterial und der Membran bzw. den Materialien der Elektroden fest und dicht genug ist, um einen Austritt von Reaktionsgasen zu verhindern. Als Materialien zur Ausbildung des Dichtrandes 5 kommen Kunststoffe in Frage, und zwar in erster Linie solche, wie sie auch für die erste Ausführungsform des Dichtrands geeignet sind. Um die Haftung an der Stirnseite der sehr dünnen Membran 2 in jedem Fall zu gewährleisten, kann vor dem Anbringen des Dichtrands 5 ein Haftvermittler, z.B. ein  $\text{SiO}_2$  ausscheidender Haftvermittler, 11 aufgebracht werden oder die Stirnseite der Membran kann angeätzt werden. Diese Ausführungsform eignet sich insbesondere für etwas dickere Membranen (ab ca. 100  $\mu\text{m}$ ), während die durch Eindringen von Dichtmittel in die Poren der Elektrodenrandbereiche ausgebildeten Dichtränder bei beliebig dünnen Membranen (z.B. 5  $\mu\text{m}$ ) bevorzugt anwendbar sind.

Die Anbringung des Dichtrandes an der Stirnseite erfolgt ähnlich wie die Ausbildung des Dichtrandes in Randbereichen der Elektroden, nämlich durch Einlegen eines Stücks eines Membran-Elektrodenmaterials geeigneter Größe in eine Vergußform, die in den Bereichen, an denen der Dichtrand ausgebildet werden soll, Raum für die Einbringung des Dichtmittels läßt, Einbringen und anschließendes Verfestigen bzw. Aushärten des Dichtmittels. Sollen im Dichtrand Durchführungen vorgesehen werden, muß die Vergußform so ausgebildet sein, daß in die Durchführungsbereiche kein oder wenig Dichtmittel eindringen kan. Dies ist beispielsweise durch Einsetzen von Stiften möglich, an denen das Dichtmittel schlecht haftet, und die daher leicht wieder entfernt werden können. Die Breite stirnseitig angebrachter Dichtränder liegt bei Membran-Elektrodeneinheiten üblicher Größe bei etwa 0,2 cm bis 1 cm, bevorzugt bei ca. 0,5 cm oder weniger.

Beim Ausbilden den Dichtrands an den Stirnseiten von Membran 2 und Elektroden 3, 4 kann bei geeigneten Reaktionsbedingungen auch Dichtmittel in die Randbereiche der Elektroden eintreten, so daß eine Kombination aus stirnseitigem Dichtrand und Dichtrand in den

Elektrodenrandbereichen 6', 7' erhalten wird, wie es in Fig. 7 durch die gestrichelten Linien angedeutet ist.

Die Fig. 8 und 9 zeigen alternative Möglichkeiten zur Ausbildung eines Hohlraums zur Aufnahme einer Gasführungsstruktur, wobei Fig. 8 die vorstehend erläuterte Möglichkeit der Ausbildung überstehender Dichtränder zeigt. In der in Fig. 9 gezeigten Ausführungsform schließen die Dichtränder 6 und 7 an Anode bzw. Kathode bündig mit der Oberfläche von Anode bzw. Kathode ab. Dafür hat die bipolare Platte 14 bzw. 15 einen dünnen Mittelbereich sowie einen dicken Randbereich 16 bzw. 17, wobei die Differenz aus der Dicke des Randbereichs und der Dicke des Mittelbereichs die Höhe des zur Aufnahme einer Gasführungsstruktur zur Verfügung stehenden Hohlraums definiert. Die Breite der Randbereiche 16 und 17 wird bevorzugt entsprechend der Breite des Dichtrands 5 gewählt.

Zur Erzielung einer besonders festen Haftung zwischen Dichtrand 5 und bipolarer Platte 14, 15 können in den überstehenden Bereichen 8, 9 des Dichtrandes Aussparungen 29 zur Aufnahme eines zusätzlichen Klebstoffs, z.B. Silicon, vorgesehen werden.

Zur Zuleitung von Reaktionsgasen, Kühlmittel oder zur Anbringung von Befestigungsvorrichtungen ist es oft erforderlich, eine oder mehrere Öffnungen oder Durchführungen in den Membran-Elektrodeneinheiten vorzusehen, die gegen ein Austreten oder Übertreten von Gasen abgedichtet werden müssen. Diese Durchführungen können jede für sich separat abgedichtet werden, wie es in den Figuren 4 und 5 gezeigt ist, bei denen jeweils nur eine Durchführung vorhanden ist, die durch mit Dichtmittel gefüllte Bereiche 5' abgedichtet wird. Wenn mehrere Durchführungen benötigt werden, können diese auch zu einer oder mehreren Gruppen nahe beieinanderliegender Durchführungen zusammengefaßt werden, die gemeinsam abgedichtet werden, d. h., die Durchführungen einer Gruppe werden voneinander und vom aktiven

Bereich der Membran-Elektrodeneinheit durch mit Dichtmittel gefüllte Bereiche 5' getrennt.

5 Bei diesen Ausführungsformen muß allerdings für die Durchführungen und ihre Abdichtungen ein Teilbereich der Membran-Elektrodeneinheit verwendet werden, der ansonsten als aktiver Bereich zur Verfügung stünde. Dieser Verlust an aktivem Bereich kann vermieden werden, wenn man die Durchführungen in den Dichtrand am Umfang der Membran-Elektrodeneinheit integriert, wie es beispielhaft in den Figuren 10 und 11 dargestellt ist.

Fig. 10 zeigt eine Membran-Elektrodeneinheit mit Membran 2, Anode 3, Kathode 4 und Dichtrand 5 am Außenumfang der Membran-Elektrodeneinheit, wobei auch Dichtmittel in die Randbereiche von Anode 3 und Kathode 4 eingedrungen ist unter Ausbildung des Dichtbereichs 6 bzw. 7. Der Dichtrand 5 steht über die Anodenoberfläche sowie über die Kathodenoberfläche über. In dem nur aus Dichtmittel bestehenden Bereich des Dichtrands ist eine zur Ebene der Membran-Elektrodeneinheit im wesentlichen senkrecht verlaufende Durchführung 30 vorgesehen. In Höhe des über die Anodenoberfläche überstehenden Bereichs des Dichtrands 5 zweigen davon waagrechte, d. h. parallel zur Membran-Elektrodeneinheit verlaufende Verteilerdurchführungen ab, wie aus Fig. 11 ersichtlich ist. Fig. 11 zeigt eine Aufsicht auf die Membran-Elektrodeneinheit gemäß Fig. 10 von der Anodenseite her (ohne bipolare Platte 14). Diese Verteilerdurchführungen haben, vorwiegend aus Gründen der einfachen Herstellbarkeit, die Form von Rillen 31 in der anodenseitigen Oberfläche des Dichtrands 5 und münden in den einen Gasführungsstruktur 18 enthaltenden Raum zwischen Anodenoberfläche und bipolarer Platte 14. Die Rillen 31 können bei der Herstellung des Dichtrands durch Verwendung einer passend ausgebildeten Vergußform in die Oberfläche des Dichtrands 5 eingeformt oder nachträglich in den Dichtrand eingeformt, z. B. eingefräst, werden. Die bipolare Platte 14 besitzt an der über der Durchführung 30 gelegenen Stelle eine Durchführung 24

und schließt ansonsten die Rillen 31 und den Raum für die Gasführungsstruktur 18 über der Anode gasdicht ab. Auf diese Weise kann Wasserstoff, der durch die Durchführung 30 strömt, einerseits durch die Rillen 31 der Anode 3 zugeführt werden und andererseits durch die Durchführung 24 in der bipolaren Platte 14 in die Nachbarzelle weitergeleitet werden. Zur Erzielung einer besonders festen Haftung zwischen Dichtrand und bipolarer Platte ist in dem Dichtrand eine Aussparung 29 vorgesehen, in die zusätzlicher Klebstoff eingebracht wird.

10

Die erfindungsgemäße Membran-Elektrodeneinheit mit Durchführungen im Dichtrand kann hergestellt werden, wie es vorstehend für Dichtränder ohne Durchführung beschrieben wurde, wobei die Bereiche der späteren Durchführungen und Rillen von der Form abgegrenzt werden müssen, so daß kein Dichtmittel eindringen kann. Alternativ kann auch zuerst ein Dichtrand ohne Durchführung und/oder Rillen hergestellt werden und diese dann am fertigen Dichtrand angebracht werden, etwa durch Bohren, Stanzen oder Fräsen.

15

20

25

30

Fig. 12 zeigt einen Ausschnitt aus einem Brennstoffzellen-Stapel mit Brennstoffzellen, die erfindungsgemäße Membran-Elektrodeneinheiten 1 aufweisen. Bei dem gezeigten Brennstoffzellenstapel wird Sauerstoff nicht in abgeschlossene und abgedichtete Oxidationsmittelgas-Räume eingeführt, sondern mittels eines Ventilators zwischen der den Abschluß einer Zelle bildenden bipolaren Platte und der Kathodenoberfläche der Nachbarzelle hindurchgeblasen, wobei ein Gitternetz zwischen bipolarer Platte und Kathode die Einhaltung des erforderlichen Abstands garantiert. Die in Fig. 12 gezeigte Einheit aus Membran 2, Anode 3, Kathode 4 und bipolarer Platte 14 (mit Gasdurchlässen 20 für Wasserstoff) kann, sollte sich im Laufe der Betriebsdauer des Brennstoffzellenstapels irgendwo ein Wasserstoff-Leck gebildet haben, problemlos einzeln aus dem Stapel entfernt werden, so daß der Anodenraum jeder einzelnen Zelle separat auf Dichtheit überprüft werden kann.

- 21 -

Die vorliegende Erfindung ermöglicht es somit, auf einfache und preiswerte Art Membran-Elektrodeneinheiten herzustellen, die in Kombination mit einer bipolaren Platte die Ausbildung gasdichter Elektrodenräume ermöglichen. In jeder Brennstoffzelle können die gasdichten Elektrodenräume separat auf Dichtheit überprüft werden.

5

BEZUGSZEICHENLISTE

- |    |    |  |
|----|----|--|
| 5  | 1  | Membran-Elektrodeneinheit  |
|    | 2  | Polymerelektrolytmembran   |
|    | 3  | Anode  |
|    | 4  | Kathode  |
|    | 5  | Dichtrand am Umfang der Membran-Elektrodeneinheit                              |
| 10 | 5' | Dichtrand um Durchführung 28   |
|    | 6' | Randbereich am Umfang der Anode, in den das Dichtmittel ein-<br>dringen soll   |
|    | 6  | anodenseitiger Bereich des Dichtrands 5  |
|    | 7' | Randbereich am Umfang der Kathode, in den das Dichtmittel ein-<br>dringen soll |
| 15 | 7  | kathodenseitiger Bereich des Dichtrands 5                                      |
|    | 8  | über die Anodenoberfläche überstehender Bereich des Dichtrands 5               |
|    | 9  | über die Kathodenoberfläche überstehender Bereich des Dichtrands<br>5          |
| 20 | 10 | mit Dichtmittel gefüllter Membranrandbereich                                   |
|    | 11 | Haftvermittler   |
|    | 13 | dichtrandfreier Kathodenbereich  |
|    | 14 | anodenseitige bipolare Platte  |
|    | 15 | kathodenseitige bipolare Platte  |
| 25 | 16 | verdickter Randbereich der anodenseitigen bipolaren Platte                     |
|    | 17 | verdickter Randbereich der kathodenseitigen bipolaren Platte                   |
|    | 18 | anodenseitige Gasführungsstruktur  |
|    | 19 | kathodenseitige Gasführungsstruktur  |
|    | 20 | Gasdurchlaß für Wasserstoff in bipolarer Platte 14                             |
| 30 | 21 | Zuleitung für Wasserstoff  |
|    | 22 | Ableitung für Wasserstoff  |
|    | 23 | Öffnung im Dichtrand 5'  |
|    | 24 | Durchführung in bipolarer Platte 14  |
|    | 25 | Membranrandbereiche, nicht von Elektrodenmaterial bedeckt                      |



- 26' anodenseitiger Randbereich um Durchführung 28
  - 26 anodenseitiger Bereich des Dichtrands 5'
  - 27' kathodenseitiger Randbereich um Durchführung 28
  - 27 kathodenseitiger Bereich des Dichtrands 5'
  - 5 28 Durchführung durch Membran-Elektrodeneinheit
  - 29 Aussparung im Dichtrand zur Aufnahme von Klebstoff zur Verklebung mit Bipolarplatte
  - 30 Durchführung durch Dichtrand 5
  - 31 Rillen im Dichtrand 5
- 10

## ANSPRÜCHE

5

1. Membran-Elektrodeneinheit (1) mit integriertem Dichtrand (5) für eine Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle mit einer Polymerelektrolytmembran (2), einer an einer Oberfläche der Membran angeordneten Anode (3) und einer an der anderen Oberfläche der Membran angeordneten Kathode (4), dadurch gekennzeichnet, daß die Membran (2) an beiden Oberflächen im wesentlichen vollständig von den Elektroden (3, 4) bedeckt ist und um den Umfang der Membran-Elektrodeneinheit (1) ein Dichtrand (5) vorgesehen ist, der einen Randbereich (6', 7') mindestens einer der Elektroden (3,4) durchdringt und an dem mit dem Randbereich (6', 7') in Berührung stehenden Bereich der Membran (2) haftet und/oder der an den Stirnflächen mindestens der Membran (2) haftet.
2. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß sie mindestens eine Durchführung (28) aufweist, an der mindestens in einen Teilbereich ein Dichtrand (5') vorgesehen ist, der einen die Durchführung umgebenden Randbereich (26', 27') mindestens einer der Elektroden (3, 4) durchdringt und an dem mit dem Randbereich in Berührung stehenden Bereich der Membran (2) haftet und/oder der an den Stirnflächen mindestens der Membran (2) haftet.
3. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß sie mindestens eine Durchführung (30) in dem Dichtrand (5) um den Umfang der Membran-Elektrodeneinheit aufweist.

4. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach Anspruch 3,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß im Dichtrand (5) mindestens eine mit der Durchführung (30) in  
Verbindung stehende Einrichtung (31) zur Zuführung eines  
5 Reaktionsgases zu mindestens einer Elektrode oder einem  
Elektrodenraum ausgebildet ist.
5. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach Anspruch 4,  
dadurch gekennzeichnet,  
10 daß die mindestens eine Einrichtung (31) in einer Oberfläche des  
Dichtrands (5) vorgesehene Rillen sind.
6. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 5,  
dadurch gekennzeichnet,  
15 daß der Dichtrand (5) einen Randbereich (6') der Anode (3) durch-  
dringt und an dem mit dem Randbereich (6') in Berührung  
stehenden Bereich der Membran (2) haftet.
7. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 6,  
dadurch gekennzeichnet,  
20 daß der Dichtrand (5) an den Stirnflächen mindestens der Anode (3)  
und den Stirnflächen der Membran (2) haftet.
8. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 7,  
dadurch gekennzeichnet,  
25 daß der Dichtrand (5, 5') bündig mit der membranabgewandten  
Oberfläche der mindestens einen Elektrode (3, 4) abschließt.
9. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 7,  
dadurch gekennzeichnet,  
30 daß der Dichtrand (5, 5') übersteht über die membranabgewandte  
Oberfläche der mindestens einen Elektrode (3, 4).
10. Membran-Elektrodeneinheit nach Anspruch 9,

dadurch gekennzeichnet,  
daß in dem überstehenden Bereich des Dichtrandes (5) eine Aus-  
sparung (29) zur Aufnahme eines Klebstoffs vorgesehen ist.

- 5            11. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 10,  
              dadurch gekennzeichnet,  
              daß der Dichtrand (5, 5') aus Kunststoff besteht oder Kunststoff  
              enthält.
- 10           12. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach Anspruch 11,  
              dadurch gekennzeichnet,  
              daß der Kunststoff ein Thermoplast oder ein aushärtbarer Kunststoff  
              ist, der in geschmolzenem Zustand bzw. vor dem Aushärten aus-  
15            reichend flüssig und niederviskos ist, um durch Kapillarwirkung in  
              die Poren mindestens einer der Elektroden (3, 4) eindringen zu  
              können.
13. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach Anspruch 11,  
              dadurch gekennzeichnet,  
20            daß der Kunststoff bei Raumtemperatur oder erhöhter Temperatur  
              ausreichend flüssig und niederviskos ist, um unter Druck in die  
              Poren mindestens einer der Elektroden (3, 4) eindringen zu können.
14. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 11 bis  
25            13,  
              dadurch gekennzeichnet,  
              daß der Kunststoff ein Polyethylen, ein Polypropylen oder ein  
              Polyamid ist.
15. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 11 bis  
30            13,  
              dadurch gekennzeichnet,  
              daß der Kunststoff ein Epoxidharz, ein Silicon oder ein Polyester-  
              harz ist.

16. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 15,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß der Dichtrand (5) mindestens der Anode (3) mit einer Bipolar-  
platte (14, 15) wasserstoffdicht verklebt ist.
17. Verfahren zur Herstellung einer Membran-Elektrodeneinheit (1) mit  
integriertem Dichtrand (5) für eine Polymerelektrolytmembran-  
Brennstoffzelle, folgende Schritte aufweisend:
- Bereitstellen eines Membran-Elektroden-Schichtmaterials aus  
Anodenmaterial (3), Kathodenmaterial (4) und dazwischen  
angeordnetem Polymerelektrolytmembran-Material (2),
  - Abtrennen eines Teilstücks des Schichtmaterials in der zur  
Herstellung der gewünschten Membran-Elektrodeneinheit (1)  
geeigneten Größe, wobei in dem abgetrennten Teilstück die  
Membran (2) an beiden Oberflächen im wesentlichen voll-  
ständig von den Elektroden (3, 4) bedeckt ist,
  - Ausbilden eines Dichtrandes (5) um den Umfang des Teilstücks  
dergestalt, daß der Dichtrand (5) einen Randbereich (6', 7')  
mindestens einer der Elektroden (3, 4) durchdringt und an dem  
mit dem Randbereich (6', 7') in Berührung stehenden Bereich  
der Membran (2) haftet und/oder der Dichtrand an den Stirn-  
flächen mindestens der Membran (2) haftet.
18. Verfahren nach Anspruch 17, außerdem folgende Schritte auf-  
weisend:
- Ausbilden einer Durchführung (28) und
  - Ausbilden eines Dichtrands (5') mindestens an einem Teilbe-  
reich eines die Durchführung umgebenden Randbereichs (26',  
27') mindestens einer der Elektroden (3, 4) dergestalt, daß der  
Dichtrand den Randbereich durchdringt und an dem mit dem  
Randbereich in Berührung stehenden Bereich der Membran (2)

haftet, und/oder der Dichtrand an den Stirnflächen mindestens der Membran (2) haftet.

- 5           19. Verfahren nach Anspruch 17 oder 18,  
            dadurch gekennzeichnet,  
            daß in dem Dichtrand (5) um den Umfang der Membran-  
            Elektrodeneinheit (1) mindestens eine Durchführung (30) ausgebildet  
            wird.
- 10           20. Verfahren nach Anspruch 19,  
            dadurch gekennzeichnet,  
            daß in dem Dichtrand (5) mindestens eine mit der Durchführung (3)  
            in Verbindung stehende Einrichtung (31) zur Zuführung eines  
            Reaktionsgases zu mindestens einer Elektrode oder einem  
15           Elektrodenraum ausgebildet wird.
21. Verfahren nach Anspruch 20,  
            dadurch gekennzeichnet,  
            daß die mindestens eine Einrichtung (31) in Form von Rillen in  
20           einer Oberfläche des Dichtrands (5) vorgesehen wird.
22. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 21,  
            dadurch gekennzeichnet,  
            daß der Dichtrand (5, 5') ausgebildet wird durch Eindringenlassen  
25           eines Dichtmittels in den Randbereich (6'; 7'; 26'; 27') mindestens  
            einer der Elektroden (3, 4), wobei die Poren der mindestens einen  
            Elektrode (3, 4) im wesentlichen vollständig gefüllt werden.
23. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 22,  
30           dadurch gekennzeichnet,  
            daß der Dichtrand (5, 5') ausgebildet wird durch Anbringen eines  
            Dichtmittels an den Stirnflächen mindestens einer der Elektroden (3,  
            4) und den Stirnflächen der Membran (2).

24. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 23,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß der Dichtrand (5, 5') unter Verwendung von thermoplastischem  
oder aushärtbarem Kunststoff ausgebildet wird.
- 5
25. Verfahren nach Anspruch 24,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß als Kunststoff Polyethylen, Polypropylen oder ein Polyamid  
verwendet wird.
- 10
26. Verfahren nach Anspruch 24,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß als Kunststoff ein Epoxidharz, ein Silicon oder ein Polyester-  
harz verwendet wird.
- 15
27. Verfahren nach einem der Ansprüche 24 bis 26,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß der Dichtrand (5, 5') ausgebildet wird durch Inkontaktbringen  
von Kunststoff in flüssiger Form mit einem Randbereich (6'; 7';  
20 26'; 27') mindestens einer der Elektroden (3, 4) und Verfestigen  
bzw. Aushärten.
28. Verfahren nach einem der Ansprüche 24 bis 27,  
dadurch gekennzeichnet,  
25 daß der Dichtrand (5) ausgebildet wird durch Inkontaktbringen von  
Kunststoff in flüssiger Form mit den Stirnflächen mindestens der  
Membran (2) und Verfestigen bzw. Aushärten.
29. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 28,  
dadurch gekennzeichnet,  
30 daß der Dichtrand (5, 5') unter Anwendung von Druck und/oder er-  
höhter Temperatur ausgebildet wird.
30. Verfahren nach Anspruch 29,

dadurch gekennzeichnet,  
daß vor der Anwendung von Druck evakuiert wird.

- 5           31. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 30,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß der Dichtrand (5, 5') ausgebildet wird durch Eindringenlassen  
des Dichtmittels aufgrund von Kapillarwirkung in den Randbereich  
(6', 7') mindestens einer der Elektroden (3, 4).
- 10          32. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 31,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß der Dichtrand (5, 5') dergestalt ausgebildet wird, daß er bündig  
mit der membranabgewandten Oberfläche mindestens einer der  
Elektroden (3, 4) abschließt.
- 15          33. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 31,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß der Dichtrand (5, 5') dergestalt ausgebildet wird, daß er über  
die membranabgewandte Oberfläche mindestens einer der  
20          Elektroden (3, 4) übersteht.
- 25          34. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 33,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Bereiche der Elektroden (3, 4) und/oder der Membran (2),  
an denen der Dichtrand (5, 5') ausgebildet werden soll, vor der  
Ausbildung des Dichtrands vorbehandelt werden.
- 30          35. Verfahren nach Anspruch 34,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Vorbehandlung in einem Benetzen der Bereiche der  
Elektrode (3, 4), an denen der Dichtrand ausgebildet werden soll,  
mit einem Lösungsmittel des Dichtmittels besteht.
36. Verfahren nach Anspruch 34,



**dadurch gekennzeichnet,**

daß die Vorbehandlung in einem Anfräsen der Bereiche der Oberfläche der Elektrode (3, 4), an denen der Dichtrand ausgebildet werden soll, besteht.

5

37. Verfahren nach Anspruch 34,

**dadurch gekennzeichnet,**

daß die Vorbehandlung in einem teilweisen Oxidieren der Bereiche der Kohlenstoffmaterialien der Elektrode (3, 4), an denen der Dichtrand ausgebildet werden soll, besteht.

10

1/4  
Fig. 1

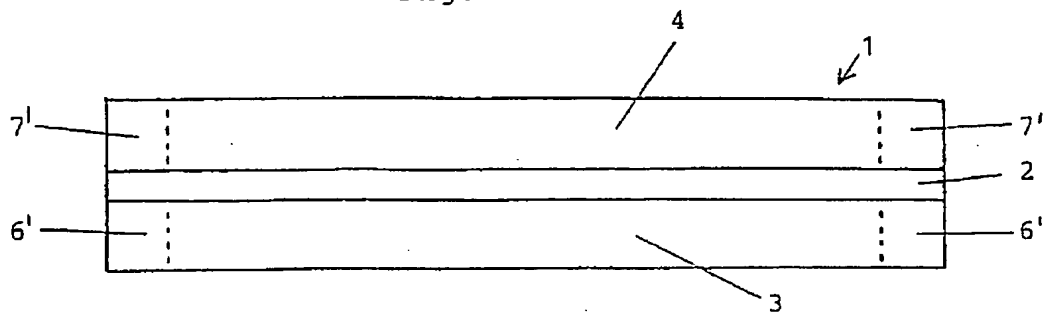


Fig. 2

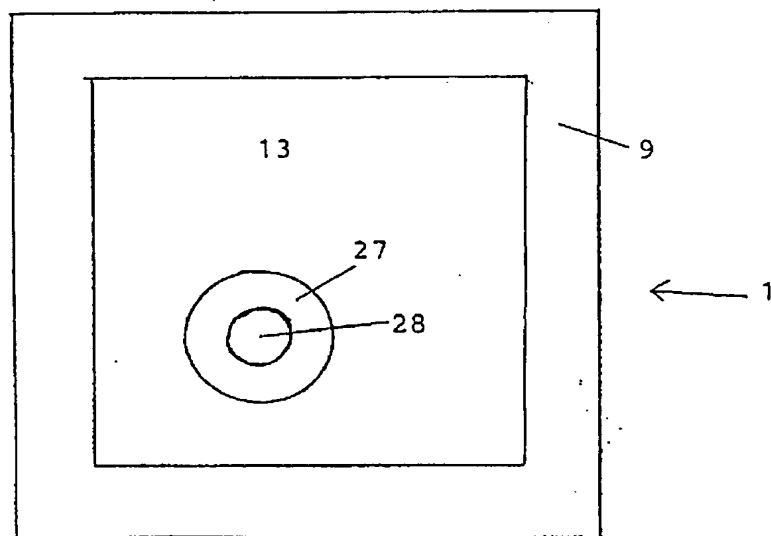
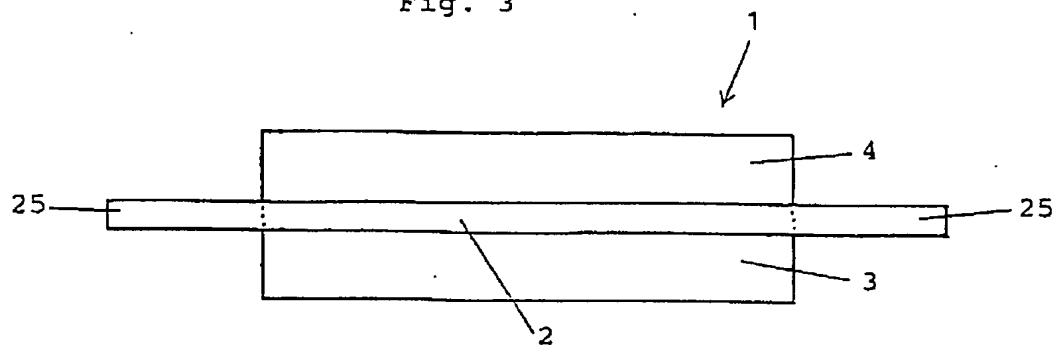
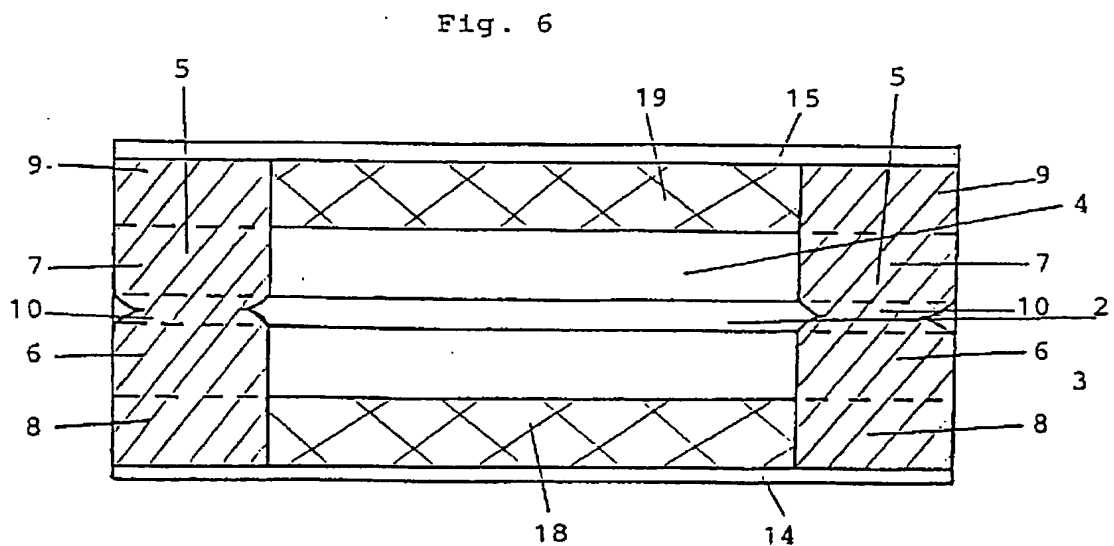
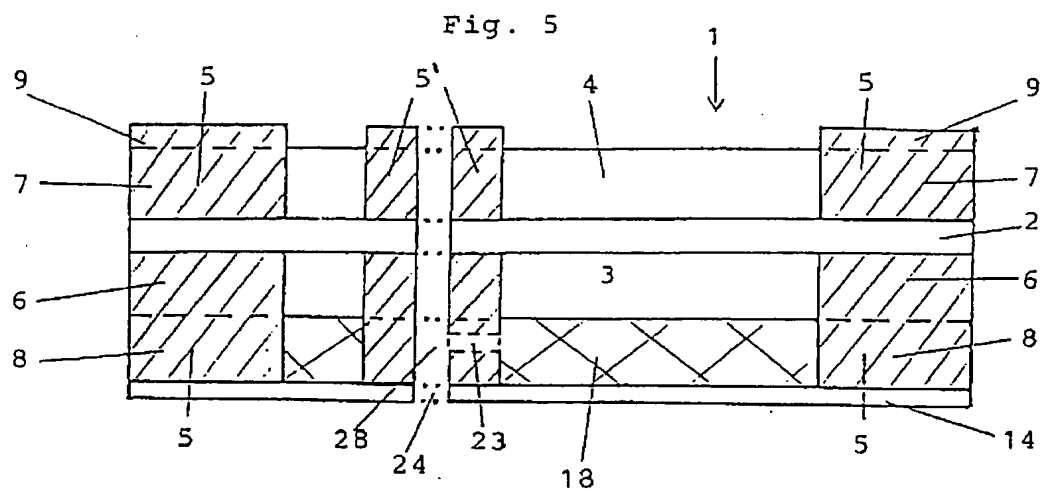
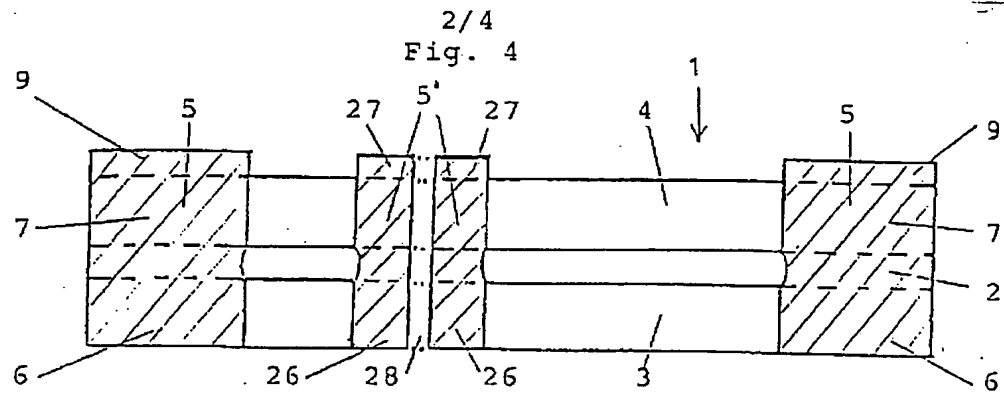


Fig. 3





3/4  
Fig. 7

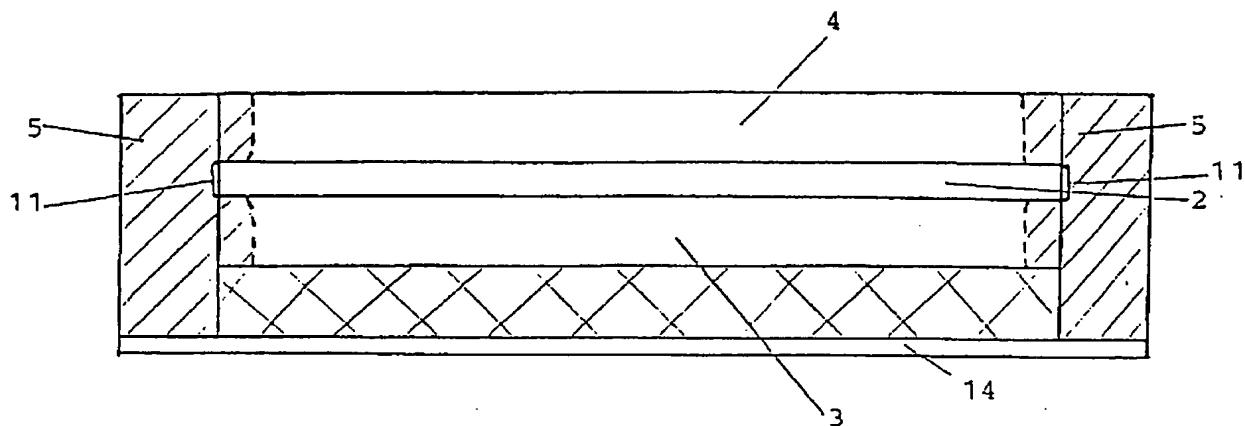


Fig. 8

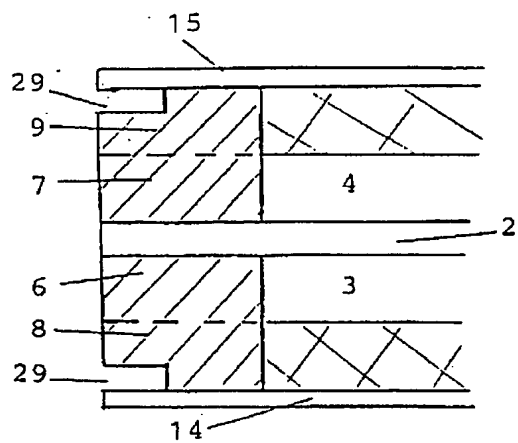


Fig. 9

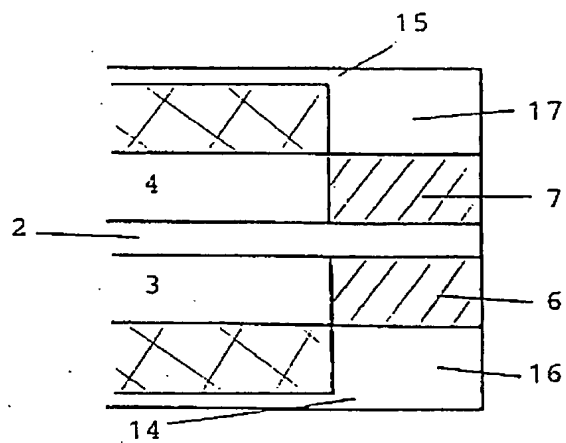
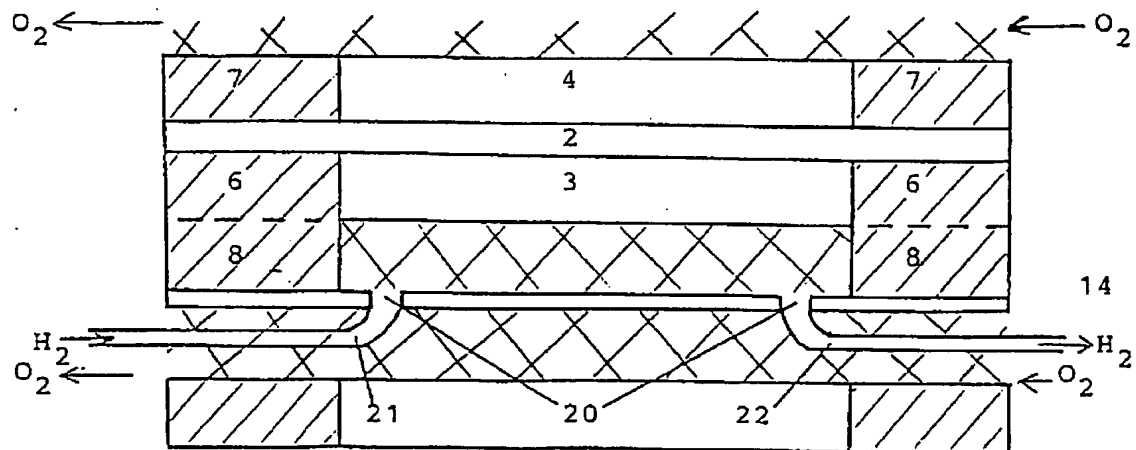


Fig. 12



4/4

Fig. 10

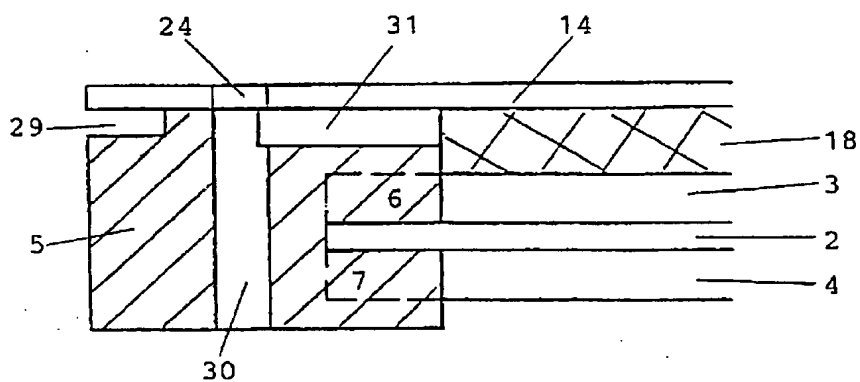
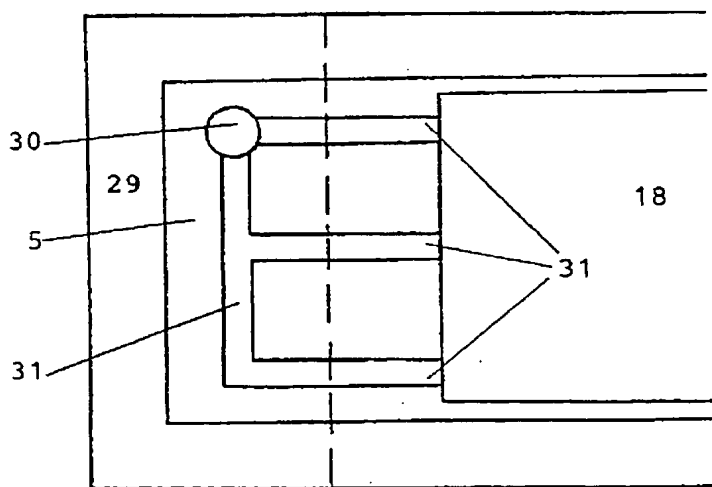


Fig. 11



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 98/00479

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> IPC 6 H01M8/02 H01M8/24		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 H01M		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 504 752 A (CLC SRL) 23 September 1992  see the whole document ---	1, 11-13, 17
A	EP 0 690 519 A (JAPAN GORE TEX INC) 3 January 1996 see claims 1-6 ---	1-37
A	EP 0 604 683 A (BALLARD POWER SYSTEMS) 6 July 1994 see claims 1-10 ---	1-37
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 013, no. 254 (E-772), 13 June 1989 & JP 01 052383 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 28 February 1989, see abstract --- <div style="text-align: center;">-/--</div>	1-37
<div style="display: flex; justify-content: space-between;"> <span><input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C.</span> <span><input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.</span> </div>		
* Special categories of cited documents :		
<div style="display: flex; justify-content: space-between;"> <div style="width: 45%;"> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> </div> <div style="width: 45%;"> <p>"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.</p> <p>"&amp;" document member of the same patent family</p> </div> </div>		
Date of the actual completion of the international search  <div style="text-align: center;">18 June 1998</div>		Date of mailing of the international search report  <div style="text-align: center;">26/06/1998</div>
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040. Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer  <div style="text-align: center;">Battistig, M</div>

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 98/00479

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>GB 2 236 012 A (WESTINGHOUSE ELECTRIC CORP) 20 March 1991 see claims 1-21</p> <p>-----</p>	1-37

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 98/00479

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0504752	A	23-09-1992	US 5178968 A JP 5109417 A	12-01-1993 30-04-1993
EP 0690519	A	03-01-1996	JP 8013179 A DE 69500295 D DE 69500295 T	16-01-1996 19-06-1997 18-12-1997
EP 0604683	A	06-07-1994	NONE	
GB 2236012	A	20-03-1991	US 5096786 A CA 2020641 A IT 1243211 B JP 3105866 A SE 503338 C SE 9002378 A	17-03-1992 12-03-1991 24-05-1994 02-05-1991 28-05-1996 12-03-1991



# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

ernationales Aktenzeichen  
PCT/EP 98/00479

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 6 H01M8/02 H01M8/24

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 6 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr
X	EP 0 504 752 A (CLC SRL) 23. September 1992 siehe das ganze Dokument ---	1, 11-13, 17
A	EP 0 690 519 A (JAPAN GORE TEX INC) 3. Januar 1996 siehe Ansprüche 1-6 ---	1-37
A	EP 0 604 683 A (BALLARD POWER SYSTEMS) 6. Juli 1994 siehe Ansprüche 1-10 ---	1-37
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 013, no. 254 (E-772), 13. Juni 1989 & JP 01 052383 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 28. Februar 1989, siehe Zusammenfassung ---	1-37
-/-		

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

18. Juni 1998

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

26/06/1998

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentleean 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Beauftragter

Battistig, M

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

ernationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/00479

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	GB 2 236 012 A (WESTINGHOUSE ELECTRIC CORP) 20.März 1991 siehe Ansprüche 1-21 -----	1-37

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

ernationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/00479

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0504752 A	23-09-1992	US 5178968 A JP 5109417 A	12-01-1993 30-04-1993
EP 0690519 A	03-01-1996	JP 8013179 A DE 69500295 D DE 69500295 T	16-01-1996 19-06-1997 18-12-1997
EP 0604683 A	06-07-1994	KEINE	
GB 2236012 A	20-03-1991	US 5096786 A CA 2020641 A IT 1243211 B JP 3105866 A SE 503338 C SE 9002378 A	17-03-1992 12-03-1991 24-05-1994 02-05-1991 28-05-1996 12-03-1991